АҢДАТПА

Философия докторы (PhD) дәрежесін алу диссертациясы

6D072000 – "Бейорганиалық заттардың химиялық технологиясы"

Имангалиева Айнур Нуралыкызы

Табиғи шикізат негізіндегі композициялық материалдардың сорбциялық және каталитикалық сипаттамалары

Диссертациялық жұмыс қолданбалы сорбциялық және катализдік қасиеттері бар табиғи шикізат негізінде жаңа композициялық материалдарды синтездеуге негізделген. Синтез әдістемесі жасалған, алынған материалдардың физика-химиялық сипаттамалары анықталған, ауыр металл иондарының сорбциялық ереекшеліктері және сары фосфордың тотығуы мен нитрофенолдың тотықсызданууының катализдік процестері зерттелген. Барлық алынған мәліметтер жаңа болып табылады, нәтижелер Web of Science және Scopus базасында рецензияланатын журналда 2 мақала түрінде жарық көрген және 2 пайдалы модельге патент түрінде қорғалған.

Зерттеу тақырыбының өзектілігі. Берілген жұмыстың өзектілігі ағын суларды тазартуда және нитрофенолдың тотықсызданууы мен сары фосфордың бутоксилдеу реакцияларында катализатор ретінде қолдану үшін табиғи шикізат негізінде жаңа композициялық материалдарды тәжірибе арқылы жасап шығару болып табылады.

Композициялық материал дегеніміз екі немесе бірнеше компоненттерден тұратын, кем дегенде біреуі қатты болып келетін, арнайы қасиеттері бар материал. Композиттердің қасиеті синергиялық эффект деп аталатын жеке фазалардың әрекеттесуі арқылы жүзеге асады. Композициялық материалдар медицинада, құрылыста, кеме жасауда, сорбция, катализде, сонымен қатар басқа да ғылым мен техника салаларында кеңінен қолданылады. Осыған сәйкес композициялық материалдардың синтезі және қасиеттері теория және практика жағынан қызығушылық тудырады.

Қазіргі кезде көптеген елдер, соның ішінде Қазақстан Республикасы үлкен экологиялық мәселе – қоршаған ортаның ластануына ұшырауда, яғни табиғи, ауыз су және ағын сулар ауыр

металдармен ластануда. Бәрімізге белгілі олар адам организміне оның қызметі мен қасиеттерін өзгерте отыра тікелей әсер етеді, яғни олар организмге жиналып метаболизмнің табиғи процестеріне әсер етеді.

Сондықтан қоршаған ортаны қорғау саласының заманауи өкілетті міндеттерінің бірі ағын суларды тазалау үшін тиімді және экологиялық қауіпсіз композициялық материалдарды іздеу болып табылады.

Сонымен қатар, КМ әр түрлі катализдік реакцияларда кең қолданылады. Берілген жұмыста үлгі реакция ретінде нитрототтың тотықсыздану мен сары фосфордың тотығуы зерттелген. Аминдерде нитротоптардың тотықсыздану процесі органикалық, фармацевтикалық және синтетикалық химияда маңызды болып табылады. Аминдердің гидрлену өнімдері бояғыштар ретінде, агрохимия және фармацевтикалық өнімдерде, сонымен қатар диазонды тұздар, ацилденген аминофенол, хинон және басқа да қосылыстар алу үшін аралық өнім ретінде қолданылады. Қазірге кезде осындай процестер үшін асыл металдар негізінде алынған бірнеше катализаторлар бар. Мұндай катализаторлардың кемшілігі бастапқы материалдардың қымбат болуы және синтез сатысының күрделілігі. Шығу тегі топырақты, өсімдік текті және теңіздік табиғи материалдар әр түрлі сорбциялық және катализдік қасиеттері бар КМ синтезі үшін қол жетімді бастапқы материал болып табылады.

Алынған КМ катализдік қасиеті – сары фосфордан фосфор қышқылын және фосфор бар органикалық қосылыстар (ФОҚ) алу үлгілі реакцияларында зерттелген. Фосфор қышқылы H_3PO_4 концентрлі фосфоры бар тыңайтқыштар өндірісінде маңызды аралық өнім болып табылады. Сонымен қатар, фосфор қышқылы әр түрлі техникалық тұздар, фосфорорганикалық қосылыстар өндірісінде, инсектицид, жартылайөткізгіштер, ионалмасу шайырлар, металлдарға қорғаныш қабат жасауда қолданылады. Тағамдық немесе тазаланған фосфор қышқылы тағам өнеркәсібінде, фармацевтикалық препараттар мен тамақ концентраттарында қолданылады. Қазіргі кезде құрамында 25 % P_2O_5 бар кендерді қышқылдық ыдырату кең тараған. Фосфор қышқылы кенді еріту кезінде, яғни фосфор қосылыстарын экстракция арқылы тікелей алуда түзіледі. Осыдан экстракциялық фосфорлы қышқыл (ЭФҚ) пайда болады. Бай емес рудадан термиялық қышқыл алынады. Процесс жоғары температурада табиғи фосфаттан кокспен фосфорға тотықсыздандыруға және фосфордан H_3PO_4 алуға негізделген. Аталған тәсілдердің реакция кезінде қышқылды қалдықтардың түзілуіне байланысты кемшіліктері болады.

Қазіргі кезде үшалкилфосфаттар өндірісінде алдымен сары фосфордың P_4 молекулалық хлормен тотығуын жүргізеді. Реакция нәтижесінде барлық хлор бүкіл процесс кезінде PCl_3-тің алынуына жұмсалады, өте қиын утилизденетін хлоры бар қалдыққа айналады. Сондықтан берілген жұмыстың өзектілігі P_4 каталитикалық реакциясының жеткіліксіз дамуына, Қазақстанда сары фосфордың құнды құрамында фосфор бар өнімдерге конверсиясы бойынша өндірістердің болмауына және қоршаған ортаны қорғау талаптарының жоғарылауына байланысты сары фосфордан ФОҚ синтезін альтернативті «хлорсыз» процесті іздеу қажеттілігіне негізделген.

Жұмыстың мақсаты – сулы ерітінділерден ауыр металл иондарының сорбциялау және 4-нитрофенолдың тотықсыздануы мен сары фосфордың бутоксилдеу реакцияларында катализдік белсенділік қабілеті бар табиғи шикізат негізінде қол жетімді, тиімді композициялық материалдарды алу болып табылады.

Зерттеу міндеттері. Қойылған мақсатқа жету үшін келесідей тапсырмаларды шешу міндеттелді:

- сазды, өсімдіктекті және теңіздік сияқты табиғи шикізат және әр түрлі полимерлі түрлендіргіштер (ПЭГ, ПВП) негізінде композициялық материалдар алудың тиімді жағдайларын жасау және анықтау;
- алынған композициялық материалдардың физика-химиялық және текстуралық сипаттамаларын анықтау;
- Cu^{2+}, Cd^{2+}, Pb^{2+}, Ni^{2+} ауыр металл иондарының алынған КМ қатысты сорбция жүргізудің тиімді жағдайларын жасау;
- 4-нитрофенолдың 4-аминофенолге дейін тотықсыздануы реакциясына енгізілген мыс-полимерлі катализаторларының катализдік сипаттамаларын анықтау;
- оттек атмосферасында фосфор қышқылын ала отырып сулы ерітіндіде сары фосфордың тотығуының катализдік реакциясына енгізілген мыс-полимерлі катализаторларының катализдік сипаттамаларын анықтау;
- оттек атмосферасында сулы ерітіндіде гомегенді мыс-полимерлі катализаторлары қатысында сары фосфордың фосфор қышқылына тотығуының катализдік реакциясының тиімді жағдайларын жасау;
- инертті атмосферада төртхлорлы көміртекпен бутанольді ортада мыс-полимерлі катализаторлары қатысында сары фосфордың тотығуының катализдік реакциясының тиімді жағдайларын жасау.

Зерттеу обьектілері: бентонитті саз, цеолит, апельсинді және мандарин қабығы, хитозан және полимерлі модификаторлар (ПЭГ, ПВП) негізінде алынған композициялық материалдар

Зерттеу нысаны: композициялық материалдар синтезі; КМ алынған сулы ерітінделерден ауыр металл иондарын сорбциялық бөліп алу; 4-нитрофенолдың тотықсыздануының катализдік және тотығу реакциялары.

Жұмыстың жаңалығы. Жұмыстың ғылыми жаңалығы жаңа полимер-бейорганикалық композициялық материал синтездеудің тиімді жағдайларын жасау болып табылады. Алғаш рет сорбциялық әдіспен ауыр металл иондарын судан тазалау үшін алынған КМ қолдану мүмкіндігі көрсетілген. Алғаш рет синтезделген мыс бар КМ 4-нитрофенолды гидрлеу және сары фосфордың тотығу реакцияларында катализатор ретінде қолданылды, ары қарай фосфор қышқылы мен форфор қышқылының эфирлерін алуға мүмкіндік береді.

Ғылыми-практикалық маңыздылығы. КМ өндірісі Қазақстан Республикасы экологиялық дамуына тұрақты үлесін қосуда. Жұмыс барысында жүргізілген зерттеулер алынған материалдарды өндіріс орындарында ағын суларды тазалау үшін тиімді, қол жетімді және арзан сорбент ретінде қолдануға мүмкіндік береді. Сонымен қатар, табиғи бентонит пен цеолитте иммобилизденген, полиэтиленгликольмен түрлендірілген in situ Cu_2O нанобөлшектерінің қатысында 4-нитрофенолдың тотықсыздануының зерттелген реакциясы тиімділігі жоғары және экономикалық қол жетімді болып табылады. Қазақстан фосфритті кендердің қорына бай. Осыған қатысты, фосфоры бар өнімдерді алу еліміз үшін маңызды бағыт. Фосфор қышқылы әр түрлі техникалық тұздар, фосфорорганикалық қосылыстар өндірісінде, инсектицид, жартылайөткізгіштер, ионалмасу шайырлар, металлдарға қорғаныш қабат жасауда қолданылады. Жұмыста фосфор қышқылын алу реакциясында мыс (II) ионының және полиэтиленгликольмен (ПЭГ) жаңа полимерметалдық катализаторлардың катализдік қасиеті көрсетілген. Сонымен бірге, жұмыста гетерогенді катализатор – $CuCl_2$-ПВП қатысында сары фосфорды тотықтыра бутоксилдеу реакциясы зерттелген, ол жоғары катализдік белсенділігі және талғағыштығына байланысты сары фосфордан тікелей бағалы фосфор қышқылының эфирлерін синтездеуге мүмкіндік береді. Алынған фосфор қышқылының эфирлері пластификатор, антипирен, еріткіш, комплекстүзгіш, жылутасымалдағыштар және сирек және трансуранды элементтер үшін тиімді экстрагенттер ретінде кеңінен қолданылады. Алынған нәтижелердің физикалық химия (гетерогенді процестердің термодинамикасы мен кинетикасы: сорбция, катализ), координациялық қосылыстар химиясын дамыту үшін теориялық маңызы бар екенін айта кетуге болады.

Зерттеу әдістері. Берілген жұмыста келесідей физика-химиялық талдау әдістері пайдаланылды: рентгенофазалық талдау, инфрақызыл спектрометрия, электронды микроскопия, БЭТ, атомды-абсорбциялық спектроскопия, UV-спектрофотометрия.

Жұмыс тақырыбының ғылыми-зерттеу жұмыстары және әр түрлі мемлекеттік бағдарламалармен байланысы. Жұмыс ҚР ҒБМ қаржыландыратын «Техногенді минеральды шикізат негізінде құрамында фосфор бар қосылыстарды алудың ғылыми негізін жасау» - 2015-2017 (№ г.р. 0115РК00515) жобасы негізінде орындалды.

Қорғауға енгізілетін негізгі натижелер:

- Синтезделген композициялық материалдардың құрамы мен құрылымының физика-химиялық зерттеу нәтижелері;
- Табиғи шикізат негізінде композициялық материалдармен Cu^{2+}, Cd^{2+}, Pb^{2+}, Ni^{2+} иондарын сулы ерітінділерден тазалаудың тиімді жағдайлары;
- композициялық материал – in situ Cu_2O/ПЭГ-бентонит (цеолит) қатысында 4-нитрофенолды катализдік тотықсыздандыру процесінің зерттеу нәтижелері;
- Гомогенді катализаторлар [$Cu(ПЭГ)_2Cl_2$] қатысында сары фосфорды катализдік тотықтыру процесінің зерттеу нәтижелері;
- Композициялық материалдар – $CuCl_2$-ПВП-тасымалдаушы қатысында сары фосфорды катализдік тотықтыру процесінің зерттеу нәтижелері.

Жұмыс нәтижелерін апробациялау. Жұмыстың негізгі нәтижелері Халықаралық конференциялар мен семинарларда көрсетілді және талқыланды: V Бүкілресейлік ғылыми жастар мектеп-конференциясы «Сигма таңбалы химия: зерттеу, инновация, технология» (Омбы, 15-20 мамыр 2016**);** Халықаралық ғылыми конференция «Заманауи Қазақстандағы инновациялық даму және ғылымның қажеттілігі» (Алматы, 20-21 қазан 2016); Студенттер мен жас ғалымдарға арналған Халықаралық ғылыми конференция «Фараби оқулары» (Алматы, 11-14 сәуір 2016); Студенттер мен жас ғалымдарға арналған Халықаралық ғылыми конференция «Фараби оқулары» (Алматы, 11-12 сәуір 2017); 4th International Russian-Kazakh Scientific and Practical conference “Chemical Technology of Functional Materials” (Almaty, 12-13 April 2018); Студенттер мен жас ғалымдарға арналған Халықаралық ғылыми конференция «Фараби оқулары» (Алматы, 9-10 сәуір 2018).

Жарияланымдар. Диссертация нәтижелері 24 жұмыстарда жарияланған, оның ішінде:

- 2 мақала, IF=0.305 Studia UBB Chemia және IF=0.925 Bulletin of Materials Science атты Scopus және Web of Science базаларында индексирленетін халықаралық ғылыми басылымдарда;

- 2 пайдалы модельге патенттерде;

- 6 мақала, Қазақстан Республикасы білім және ғылым Министрлігінің білімді бақылау саласы бойынша Комитеті ұсынған журналдарда;

- 14 Халықаралық, Республикалық ғылыми семинар және конференциялада жарық көрген.

Автордың жеке үдесі тәжірибені құру және жүргізу, қойылған мақсаттарды теориялық және тәжірибелік мақсатта шешу, талдау, алынған нәтижелерді негіздеу және жалпылауда болып табылады.

Диссертацияның құрылымы және көлемі. Диссертациялық жұмыс кіріспе, әдеби шолу, тәжірибелік бөлім, нәтижелер және оларды талқылау, қорытынды, пайдаланған әдебиет тізімі және қосымшадан тұрады. Диссертациялық жұмыстың жалпы көлемі 92 бет, 45 сурет және 28 кестені құрайды. Пайдаланған әдебиет тізімі 204 болып табылады.